

# Структурные особенности системы Леннарда–Джонса при плавлении и кристаллизации

Б. А. Клумов

Институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 сентября 2012 г.

После переработки 27 декабря 2012 г.

Рассматриваются структурные особенности кристаллизации и плавления системы частиц, парное взаимодействие между которыми описывается потенциалом Леннарда–Джонса. Для количественного описания ближнего порядка используется метод вращательных инвариантов (сферических гармоник). Вращательные инварианты второго ( $q_l$ ) и третьего ( $w_l$ ) рода вычисляются (что требует лишь информации о мгновенном пространственном расположении атомов и относительно легко достижимо в эксперименте) для каждой частицы системы и дают важные характеристики фазового состояния системы – функции распределения частиц по величинам  $q_l$  и  $w_l$  (где  $l$  – ранг инварианта; в настоящей работе представлены результаты для  $l = 4, 6$ ). Показано, что кумулянт распределения частиц по величине  $w_6$  является чрезвычайно чувствительным к разрушению/образованию ближнего ориентационного порядка в системе Леннарда–Джонса и, соответственно, может быть использован как критерий плавления и кристаллизации данной системы.

DOI: 10.7868/S0370274X13060088

Кристаллизация и плавление вещества являются фазовыми переходами и принадлежат к наиболее важным и фундаментальным разделам физики конденсированного состояния. Структурные особенности при таких переходах еще до конца не выявлены даже для относительно простых модельных систем, таких, как твердые сферы [1, 2], заряженные микрочастицы (к которым относится коллоидная [3, 4] и комплексная [5–8] плазма), система Леннарда–Джонса (см., например, [9–12]) и т.д., хотя в многочисленных экспериментальных и теоретических исследованиях твердо установлено, что физические и механические свойства конденсированного вещества в значительной степени определяются ближним порядком атомов (см., например, [13, 14]). Обычно ближний порядок (и ассоциированные с ним процессы плавления и кристаллизации вещества) исследуют, анализируя радиальное поведение парной корреляционной функции (RDF – *radial distribution function*), усредненной по угловому распределению частиц. При этом пространственная ориентация частиц, лежащих в первой координационной сфере RDF (ориентационный ближний порядок), очевидно, не учитывается, хотя, как будет здесь показано, она играет очень важную роль в процессах плавления и кристаллизации. (Отметим одни из первых работ [13, 14], в которых делалась попытка описать переход жидкость–кристалл, базируясь на свойствах ориентационного ближнего порядка.)

В настоящей статье исследуется ориентационный ближний порядок (и его структура) у системы частиц, взаимодействующих посредством потенциала  $U_{LJ}(r)$  Леннарда–Джонса (в безразмерном виде этот потенциал имеет вид (см., например, [15])  $U_{LJ}(r) = 4[(1/r)^{12} - (1/r)^6]$ ).

Применяется стандартный метод молекулярной динамики (см., например, [15]), который описывает поведение системы Леннарда–Джонса в кубическом термостате размером  $L$  при постоянных температуре  $T^*$  и плотности  $\rho^*$  (так называемый NVT-ансамбль) с использованием периодических граничных условий.

Моделирование проводилось для  $N = 4000$  частиц, которые в начальный момент времени были либо случайно распределены (при исследовании кристаллизации системы LJ) в заданном объеме  $V$ , либо расположены в узлах кубической гранецентрированной решетки (ГЦК, *fcc face-centered-cubic*) (при исследовании плавления системы LJ). В обоих случаях температура системы уменьшалась/увеличивалась (при заданной плотности  $\rho$ ) с небольшим шагом  $\delta T$ . При новой температуре в качестве начальной были использованы конфигурации частиц, описанные выше. Для каждой температуры  $T^*$  находились квазиравновесные конфигурации частиц, которые использовались в дальнейшем для нахождения структурных свойств системы.

Для определения локального порядка удобно использовать метод локальных вращательных инва-

риантов, предложенный в [10] и широко используемый для определения структуры ориентационного ближнего порядка частиц в самых разных системах, таких, как твердые сферы [16–19], коллоидная [4, 20] и комплексная [7, 21–23] плазма, система Леннарда–Джонса [11, 12, 24], гранулированные системы и т.д. В рамках этого подхода для каждой  $i$ -й частицы сначала определяется  $N_b(i)$  ближайших соседей. Векторы  $\mathbf{r}_{ij}$ , соединяющие  $i$ -частицу с ближайшими соседями ( $j = 1, \dots, N_b$ ), позволяют определить локальный ориентационный параметр (*bond order parameter*)  $q_{lm}(i)$  для каждого атома/частицы:

$$q_{lm}(i) = \frac{1}{N_b(i)} \sum_{j=1}^{N_b(i)} Y_{lm}(\theta_j, \phi_j), \quad (1)$$

где  $Y_{lm}(\theta, \phi)$  – сферические гармоники,  $\theta, \phi$  – угловые координаты  $j$ -й частицы, определяемые вектором  $\mathbf{r}_{ij}$ . Отметим, что определяемый таким образом локальный ориентационный порядок зависит только от двух параметров – углового распределения ближайших соседей  $\theta_i$  и  $\phi_i$ . Расстояния же до них  $r_{ij}$  учитываются неявно посредством определения ближайших соседей как частиц, которые находятся в первой координационной сфере – в окрестности первого максимума парной корреляционной функции  $g(r)$ .

Значения  $q_{lm}(i)$ , очевидно, зависят от выбора системы координат (и потому являются малопривлекательными с точки зрения определения локального ориентационного порядка). Поэтому для каждой частицы вычисляются вращательные инварианты второго ( $q_l(i)$ ) и третьего ( $w_l(i)$ ) рода:

$$q_l(i) = \left[ \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^{m=l} |q_{lm}(i)|^2 \right]^{1/2}, \quad (2)$$

$$w_l(i) = \sum_{\substack{m_1, m_2, m_3 \\ m_1+m_2+m_3=0}} \begin{pmatrix} l & l & l \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} q_{lm_1}(i) q_{lm_2}(i) q_{lm_3}(i), \quad (3)$$

где  $\begin{pmatrix} l & l & l \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}$  – вигнеровские  $3j$ -символы, причем в последнем уравнении суммирование производится по всем индексам  $m_i = -l, \dots, l$ , которые удовлетворяют условию  $m_1 + m_2 + m_3 = 0$ . Из уравнения (3) видно, что вращательные инварианты третьего рода  $w_l \propto q_l^3$ , поэтому, вообще говоря, они значительно чувствительнее к разрушению/образованию ориентационного порядка, чем  $q_l$ , это, в частности, будет показано ниже.

Важно отметить, что каждый тип кристаллической решетки имеет свой уникальный набор вращательных инвариантов  $q_l$  и  $w_l$ . Это дает возможность определить наблюдаемую в эксперименте или моделировании упорядоченную структуру, сравнивая значения  $q_l$ ,  $w_l$ , вычисленные для каждой частицы, с величинами  $q_l^{\text{id}}$ ,  $w_l^{\text{id}}$  для идеальных решеток, т.е. определить локальный (ближний) порядок (*local order*) в системе. Для идентификации кристаллической структуры обычно используют вращательные инварианты  $q_4, q_6$  второго рода и  $w_4, w_6$  третьего рода, которые для совершенных кристаллов могут быть относительно легко вычислены.

Например, у кристаллов с решеткой ГЦК (fcc), с гексагональной плотной упаковкой (ГПУ, hcp – *hexagonal close packed*) и у икосаэдрической фазы (ico) число ближайших соседей для каждого атома/частицы  $N_b = 12$  и указанные вращательные инварианты равны: для ГЦК (fcc)  $q_4^{\text{fcc}} = 0.1909$ ,  $q_6^{\text{fcc}} = 0.5745$ ,  $w_4^{\text{fcc}} = -0.1593$ ,  $w_6^{\text{fcc}} = -0.01316$ ; для ГПУ (hcp)  $q_4^{\text{hcp}} = 0.0972$ ,  $q_6^{\text{hcp}} = 0.4847$ ,  $w_4^{\text{hcp}} = 0.1341$ ,  $w_6^{\text{hcp}} = -0.01244$ ; для икосаэдрической фазы (ico)  $q_4^{\text{ico}} = 0$ ,  $q_6^{\text{ico}} = 0.6633$ ,  $w_4^{\text{ico}} = -0.1593$ ,  $w_6^{\text{ico}} = -0.1697$ .

Следует отметить, что в термодинамическом пределе твердотельная система Леннарда–Джонса имеет гранецентрированную кристаллическую решетку (fcc). Тепловое движение атомов в зависимости от величины температуры приводит к определенному распределению частиц по параметрам  $q_6$  и  $w_6$ . Эти распределения для твердой фазы, очевидно, сосредоточены в узкой области около  $q_6^{\text{fcc}}$  и  $w_6^{\text{fcc}}$ . Для слабоупорядоченных же систем (таких, как например, жидкость или стекольная фаза) указанные распределения, как мы покажем ниже, существенно отличаются от твердотельных. Например, для подобных систем среднее значение  $\langle q_6 \rangle \simeq N_b^{-1/2}$  и заметно меньше  $q_6^{\text{fcc}}$ . Для  $N_b = 12$  величина  $\langle q_6 \rangle \approx 0.29$ .

На рис. 1 и 2 представлены зависимости, характеризующие ближний порядок в системе Леннарда–Джонса (для  $\rho^* = 1$ ) при ее нагреве и последующем плавлении (рис. 1), а также охлаждении и последующем затвердевании (кристаллизации) (рис. 2). Приведены функции распределения  $F_q(q_6)$  и  $F_w(w_6)$  частиц (PDF – *probability distribution function*) для разных температур системы в зависимости от величин вращательных инвариантов  $q_6$  (а) и  $w_6$  (б). Приведенные PDF (что было специально проверено длительными MD расчетами) являются квазистационарными и практически не зависят от темпа нагрева/охлаждения. Тем не менее в дальнейшем представляется интересным рассмотреть влияние разме-

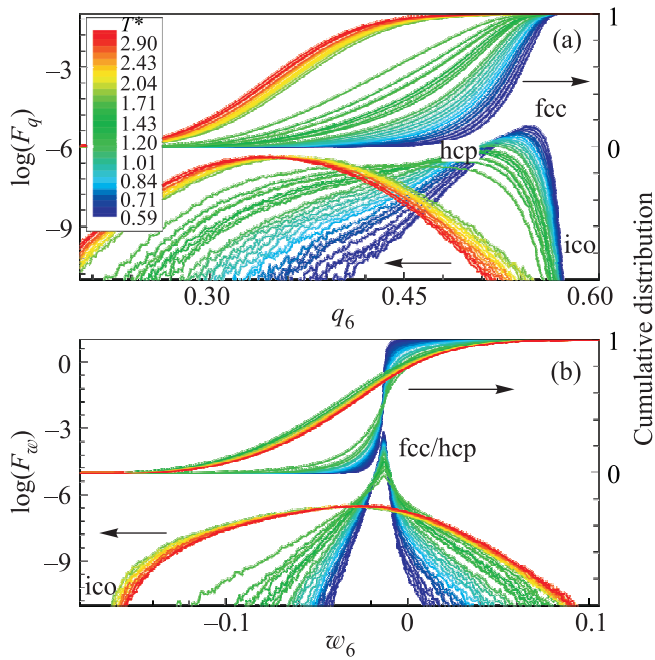


Рис. 1. (Color online) Плавление системы Леннарда–Джонса при  $\rho^* = 1$ . Представлены функции распределения частиц  $F_q$  и  $F_w$  в зависимости от величины вращательных инвариантов  $q_6$  (a) и  $w_6$  (b) (вычисленных по 12 ближайшим соседям,  $N_{nn} = 12$ ). Верхние кривые – кумулянты данных распределений при разных температурах  $T^* = T_0^* + \delta T^*(i - 1)$ , где  $\delta T^*$  – константа,  $i = 1, \dots, 50$ . Цвет каждой из зависимостей соответствует определенной температуре (красный – более высокой, чем синий). Кроме того, показаны значения  $q_6$  и  $w_6$  для идеальных типов кристаллической решетки fcc/hcp/ico

ра системы (*size effect*) и времени расчета на свойства данных PDF.

Функции распределения  $F_q(q_6)$  и  $F_w(w_6)$  построены с небольшим постоянным шагом  $\delta T^*$  по температуре, что дает возможность определить область переходов кристалл–жидкость и жидкость–кристалл при плавлении и затвердевании системы Леннарда–Джонса. Часто такие функции распределения имеют достаточно сложный вид, особенно когда в системе одновременно сосуществуют разные кристаллические фазы (например, в плазменных кристаллах [7, 8, 24] и коллоидной плазме [3, 4] часто одновременно наблюдаются и ГЦК (fcc), и ГПУ (hcp) фазы). В таких случаях использования только усредненных характеристик (например, среднего значения  $\langle q_6 \rangle$  по распределению  $F_q$ ) для построения параметров, описывающих фазовый переход кристалл–жидкость, явно недостаточно. Поэтому на рис. 1 и 2 дополнительно построены кумулятивные распределения  $F_q^c(q_6)$  и

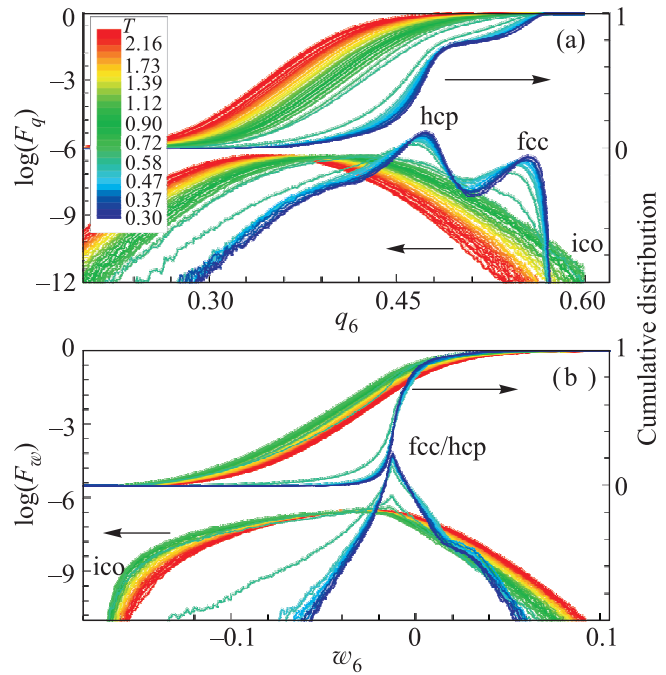


Рис. 2. (Color online) Кристаллизация системы Леннарда–Джонса при  $\rho^* = 1$ . Представлены функции распределения частиц  $F_q$  и  $F_w$  в зависимости от величины вращательных инвариантов  $q_6$  (a) и  $w_6$  (b) (вычисленных по 12 ближайшим соседям,  $N_{nn} = 12$ ). Верхние кривые – кумулянты данных распределений при разных температурах  $T^* = T_0^* - \delta T^*(i - 1)$ , где  $\delta T^*$  – константа,  $i = 1, \dots, 50$ . Цвет каждой из зависимостей соответствует определенной температуре (красный – более высокой, чем синий). Кроме того, показаны значения  $q_6$  и  $w_6$  для идеальных типов кристаллической решетки fcc/hcp/ico

$F_w^c(w_6)$ , определяемые, например, для  $F_q^c$  из соответствующей PDF:  $F_q^c(x) = \frac{1}{N} \int_{-\infty}^x F(q_6) dq_6$ , где  $N$  – число частиц в системе. Очевидно, что  $F_q^c(\infty) \equiv 1$ , а  $F_q^c(x)$  – доля частиц, у которых величина  $q_6 \leq x$ . Недавно было показано, что такие кумулянты прекрасно описывают плавление/кристаллизацию в комплексной плазме [7, 8, 25] и кристаллизацию твердых сфер [20] в окрестности берналовского предела.

Рассмотрим особенности плавления системы Леннарда–Джонса с точки зрения поведения параметра  $q_6$ . Начальное распределение частиц (рис. 1a, синие линии) соответствует нагретой ГЦК (fcc) решетке (с  $q_6 \approx q_6^{\text{fcc}} \approx 0.55$ ), причем частицы с  $q_6 \geq q_6^{\text{fcc}}$  в системе практически отсутствуют. Отметим, что частицы с икосаэдрическим типом симметрии (*five-fold symmetry*) имеют максимальное значение  $q_6$  среди всех типов кристаллической решетки с  $N_b = 12$ . Тепловое движение приводит к искажению идеальной структуры и заметному

уменьшению величины  $q_6$  для этой фазы. Фактически частицы с  $q_6 \geq 0.6$  являются искаженными (*ico-like*) квазикристаллическими структурами.

Увеличение температуры приводит к уменьшению средней по распределению величины  $\langle q_6 \rangle$ . Видно, что параметр  $\langle q_6 \rangle$  испытывает резкое уменьшение при температурах, близких к температуре  $T_m^*$  плавления системы. Этот эффект хорошо прослеживается также и по поведению кумулятивного распределения  $F_q^c$ . Резкое уменьшение величины  $\langle q_6 \rangle$  соответствует разрушению ближнего ориентационного порядка при плавлении системы. Расплав (при температурах  $T^* > T_m^*$ ) характеризуется гауссоподобным распределением  $F_q(q_6)$  с медленно уменьшающейся при нагреве величиной  $\langle q_6 \rangle$ . Таким образом, видно, что параметр  $q_6$ , а также ассоциированные с  $q_6$  распределения  $F_q$  и  $F_q^c$  являются важными характеристиками, с помощью которых можно описывать переход кристалл–жидкость и для системы Леннарда–Джонса. Отметим, что наряду со средним значением  $\langle q_6 \rangle$  в качестве параметра можно использовать значение  $q_6^{hh}$  на полувысоте кумулятивного распределения  $F_q^c$ , определяемого выражением

$$F_q^c(q_6^{hh}) = \int_{-\infty}^{q_6^{hh}} F_q^c(q_6) dq_6 \equiv \frac{1}{2}. \quad (4)$$

Однако функция распределения  $F_w(w_6)$  и соответствующее кумулятивное распределение  $F_w^c(w_6)$  являются значительно более чувствительными к фазовому переходу кристалл–жидкость, что иллюстрирует рис. 1b. Кумулятивные распределения  $F_w^c$  ясно демонстрируют расслоение на твердотельную (*solid-like*) (при  $T^* \leq T_m$ ) и жидкую (*liquid-like*) (при  $T^* \geq T_m$ ) фазы. Такое поведение зависимости  $F_w^c$  позволяет ввести новый параметр, характеризующий плавление и ассоциированный с указанным кумулятивным распределением. Это параметр  $w_6^{hh}$ , определяемый аналогично величине  $q_6^{hh}$ :

$$F_w^c(w_6^{hh}) = \int_{-\infty}^{w_6^{hh}} F_w^c(w_6) dw_6 \equiv \frac{1}{2}. \quad (5)$$

Тот факт, что то, что  $w_6^{hh}$  замечательно описывает переход кристалл–жидкость (и разрушение ориентационного ближнего порядка соответственно), связан с тем, что для идеальных решеток ГЦК (fcc) и ГПУ (hcp), т.е. для основных кристаллических фаз в твердотельной системе Леннарда–Джонса, вращательные инварианты  $w_6$  практически равны:  $w_6^{fcc} = -0.01316 \approx w_6^{hcp} = -0.01244$ . Этим же объясняется и форма распределения  $F_w$  для твердотельной фазы.

Отметим, что большим преимуществом кумулятивных распределений является их гладкость и отсутствие резких скачков. Дополнительно из таких распределений сразу легко определяется число кристаллизованных частиц с определенным типом симметрии (аналогично определяется и число частиц, находящихся в жидкостной фазе).

Структурные особенности при затвердевании/кристаллизации ограниченной системы Леннарда–Джонса представлены на рис. 2. На нем приведены те же зависимости, что и на рис. 1. Хорошо видно, что функции распределения частиц  $F_q$  и  $F_w$  в зависимости от вращательных инвариантов  $q_6$  и  $w_6$ , как и в случае плавления, испытывают сильную перестройку в области фазового перехода. Однако есть и существенные отличия. Происходит формирование промежуточной метастабильной ГПУ (hcp) фазы, что проявляется в возникновении ярко выраженного пика на зависимости  $F(q_6)$  в области значений  $q_6$ , близких к  $q_6^{hcp} \approx 0.48$ .

Важно отметить, что сначала при понижении температуры величина  $\langle q_6 \rangle$  растет без изменения формы распределения  $F(q_6)$ , которая соответствует слабоупорядоченной системе. Происходит лишь сдвиг распределения в сторону больших значений  $q_6$ . При этом форма функции распределения  $F_q(w_6)$  близка к гауссовой и меняется слабо. Последнее означает, что и слабоупорядоченную систему можно описывать такими PDF. При этом на определенном этапе в системе появляются частицы с икосаэдрическим типом симметрии (*ico-like*) с  $q_6 \geq 0.6$  и  $w_6 \leq -0.15$  (таким температурам соответствуют зеленые линии на рис. 2.). Дальнейшее понижение температуры приводит к появлению кристаллических кластеров, сначала в основном ГПУ-подобных (*hcp-like*). В области же перехода жидкость–кристалл после быстрой перестройки формируются твердотельные распределения  $F_w$  и  $F_q$ , а икосаэдрическая фаза практически полностью исчезает. Таким образом, появление в системе заметного числа частиц с икосаэдрическим типом симметрии, по-видимому, является предвестником кристаллизации. Долю таких частиц можно использовать как параметр, характеризующий состояние кристаллизующейся системы.

На рис. 3 приведены температурные зависимости ряда уже описанных выше параметров, характеризующих плавление и кристаллизацию системы Леннарда–Джонса, рассчитанные для  $\rho^* = 1.5$ . (Здесь приводятся только результаты для плавления системы Леннарда–Джонса, поскольку кристаллизация обнаруживает практически то же поведение указанных параметров.) Дополнительно на этом ри-

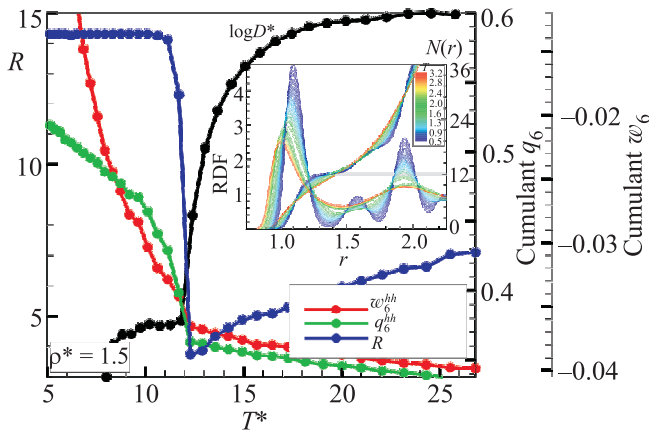


Рис. 3. (Color online) Параметры, характеризующие плавление и кристаллизацию системы Леннарда–Джонса в зависимости от безразмерной температуры  $T^*$  для плотности  $\rho^* = 1.5$ . Представлены кумулянты  $w_6^{hh}$  (синяя линия) и  $q_6^{hh}$  (зеленая линия) распределений  $F_w(w_6)$  и  $F_q(q_6)$ , параметр  $R = g_{\max}/g_{\min}$  (красная линия) и коэффициент диффузии  $\log(D^*)$  (черная линия) (в рассмотренном диапазоне температур вариации  $D^*$  составляют примерно два порядка величины). На вставке показаны парная корреляционная функция  $g(r)$  и ее кумулянт  $N_r(<r) \equiv \int_0^r 4\pi r^2 g(r) dr$  для ряда температур в области перехода кристалл–жидкость (температура растет от синего цвета к красному). Горизонтальная серая линия на вставке соответствует  $N_r = 12$

сунке приводится зависимость от температуры полуэмпирического критерия плавления – параметра  $R = g_{\max}/g_{\min}$ , предложенного в [26]. Здесь параметры  $g_{\max}$ ,  $g_{\min}$  – значения первого максимума и первого ненулевого минимума парной корреляционной функции  $g(r)$ , определяемой из выражения  $g(r) = \frac{V}{N^2} \left\langle \sum_i^N \sum_{j \neq i}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{ij}) \right\rangle$ . Согласно [26] при  $R \simeq 5$  наблюдается плавление/кристаллизация системы Леннарда–Джонса. Кроме того, на рис. 3 приводится динамический параметр – эффективный коэффициент диффузии  $D^*$ , определяемый из среднеквадратичного отклонения  $\delta r^2$ , усредненного за время  $\tau$  по всем частицам ансамбля:  $D^* = \delta r^2/\tau$ , где  $\delta r^2 = \frac{1}{N} \sum [\mathbf{r}_i(\tau + t) - \mathbf{r}_i(t)]^2$ ,  $t > t_{eq}$  – время установления квазиравновесия в системе,  $\tau \ll \Delta/v_s$ ,  $\Delta$  – среднее межчастичное расстояние,  $v_s$  – характерная скорость частиц. Отметим, что все рассмотренные параметры испытывают излом производной в узкой области температур. Однако только кумулянт  $w_6^{hh}$  меняется взрывным образом в области фазового перехода, что делает этот параметр прекрасным кандидатом для описания плавления/кристаллизации системы Леннарда–Джонса.

Вставка к рис. 3 показывает характерные парные корреляционные функции  $g(r)$  (и их кумулятивные распределения  $N_r(<r) \equiv \int_0^r 4\pi r^2 g(r) dr$ , являющиеся средним числом частиц в сфере радиуса  $r$ ) для ряда температур в области перехода кристалл–жидкость. Отметим, что в рассмотренном диапазоне температур в первой координационной сфере находится 12 частиц, так что вычисление вращательных инвариантов  $q_6$  и  $w_6$  (проведенное выше) с использованием фиксированного числа ближайших соседей  $N_{nn} = 12$  полностью оправдано. Таким образом, величина  $w_6^{hh}$  является новой метрикой, характеризующей фазовое состояние системы Леннарда–Джонса и прекрасно описывающей фазовые переходы “плавление” и “кристаллизация”. Здесь нами моделировалась ограниченная ( $N \sim 10^4$ ) система LJ. Поэтому свойства дальнего порядка (с разрушением которого обычно связывают фазовый переход кристалл–жидкость) не рассматривались. Вместе с тем указанный переход хорошо прослеживается на рис. 3, если проанализировать вид парной корреляционной функции при разных температурах. Отметим также, что определяемые в рамках данного подхода температуры плавления и кристаллизации ограниченной системы LJ находятся в хорошем согласии с термодинамическими данными (LJ melting/freezing curve) (см., например, [27]).

Применимость критерия  $w_6^{hh}$  не ограничивается системой Леннарда–Джонса. По-видимому, наряду с комплексной плазмой и твердыми сферами она применима для любых систем, у которых твердотельная фаза имеет в термодинамическом пределе тип симметрии ГЦК (fcc).

Итак, в настоящей работе на основе детальных молекулярно-динамических расчетов рассмотрены структурные особенности плавления и кристаллизации ограниченной ( $N \sim 10^4$ ) системы Леннарда–Джонса. Показано, что функции распределения частиц по вращательным инвариантам  $q_6$  и  $w_6$  (для вычисления которых, в отличие от динамических параметров, необходимо знать только мгновенное пространственное положение частиц, что легко достижимо в экспериментах, по крайней мере с комплексной и коллоидной плазмой и с гранулированными средами) прекрасно описывают ориентационный ближний порядок и являются важными характеристиками фазового состояния системы. Продемонстрировано, что можно использовать поведение плотности икосаэдрической фазы в системе в качестве предвестника кристаллизации.

Впервые предложено описывать плавление и кристаллизацию системы Леннарда–Джонса с

помощью метрики, характеризующей ориентационный ближний порядок, – кумулянта  $w_6^{hh}$ . Последний чрезвычайно чувствителен к разрушению/образованию ближнего ориентационного порядка и взрывным образом меняется в области фазовых переходов при плавлении и кристаллизации системы Леннарда–Джонса. Например, используя  $w_6^{hh}$ , можно предложить следующий критерий плавления/кристаллизации системы Леннарда–Джонса:  $\Pi_m = w_6^{hh}/w_6^{fcc} \approx 2$ .

Данное исследование было частично поддержано президиумом и отделением физических наук РАН, Министерством образования и науки РФ и Российским фондом фундаментальных исследований (грант # 13-02-00913).

1. G. Parisi and F. Zamponi, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 789 (2010).
2. S. Torquato and F. H. Stillinger, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2633 (2010).
3. A. Blaaderen and P. Wiltzius, *Science* **270**, 1177 (1995).
4. U. Gasser, E. R. Weeks, A. Schofield et al., *Science* **292**, 5515 (2001).
5. V. E. Fortov and G. E. Morfill, *Complex and dusty plasmas: From Laboratory to Space*, CRC Press 2010.
6. M. Rubin-Zuzic, G. E. Morfill, A. V. Ivlev et al., *Nature Phys.* **2**, 181 (2006).
7. B. A. Klumov, *Phys. Usp.* **53**, 1053 (2010) [*Usp. Fiz. Nauk* **180**, 1095 (2010)].
8. S. A. Khrapak, B. A. Klumov, P. Huber et al., *Phys. Rev. Lett.* **106**, 205001 (2011).
9. J. E. Lennard-Jones, *Proc. Roy. Soc. A* **106**, 463 (1924).
10. P. Steinhardt, D. Nelson, and M. Ronchetti, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1297 (1981).
11. P. Steinhardt, D. R. Nelson, and M. Ronchetti, *Phys. Rev. B* **28**, 784 (1983).
12. P. R. ten Wolde, R. J. Ruiz-Montero, and D. Frenkel, *J. Chem. Phys.* **104**, 9932 (1996).
13. A. C. Mitus and A. Z. Patashinskii, *Phys. Lett. A* **87**, 179 (1982); A. C. Mitus and A. Z. Patashinskii, *Phys. Lett. A* **88**, 31 (1983).
14. A. C. Mitus, D. Marx, S. Sengupta et al., *J. Phys.: Cond. Matt.* **5**, 8509 (1993).
15. B. Smit and D. Frenkel, *Understanding Molecular Simulation*, Academic, San Diego, 2002.
16. J. R. Errington, P. G. Debenedetti, and S. Torquato, *J. Chem. Phys.* **118**, 2256 (2003).
17. S. Torquato, T. M. Truskett, and P. G. Debenedetti, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2064 (2000).
18. V. Luchnikov, A. Gervois, P. Richard et al., *J. Mol. Liq.* **96**, 185 (2002).
19. Y. Jin and H. A. Makse, *Physica A* **98**, 5362 (2010).
20. B. A. Klumov, S. A. Khrapak, and G. E. Morfill, *Phys. Rev. B* **83**, 184105 (2011).
21. T. Kawasaki and H. Tanaka, *J. Phys. Cond. Mat.* **22**, 232102 (2010).
22. B. A. Klumov and G. Morfill, *JETP Lett.* **96**, 444 (2009); B. A. Klumov and G. Morfill, *JETP Lett.* **107**, 908 (2008).
23. S. Mitic, B. A. Klumov, U. Konopka et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 125002 (2008).
24. B. A. Klumov, P. Huber, S. Vladimirov et al., *Plasma Phys. Contol. Fusion* **51**, 124028 (2009); B. A. Klumov, G. Joyce, C. Rath et al., *EPL* **92**, 15003 (2010).
25. S. A. Khrapak, B. A. Klumov, P. Huber et al., *Phys. Rev. E* **85**, 066407 (2012).
26. H. J. Raveche, R. D. Mountain, and W. B. Streett, *J. Chem. Phys.* **61**, 1970 (1974).
27. J. P. Hansen and I. R. McDonald, *Theory of Simple Liquids*, Elsevier, USA, 2006.